

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2001-42089  
(P2001-42089A)

(43) 公開日 平成13年2月16日 (2001.2.16)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコ-ト* (参考)
G 2 1 F	5/008	G 2 1 F	5/00
	1/08		1/08
	3/00		3/00
			N

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願平11-218185

(22) 出願日 平成11年7月30日 (1999.7.30)

(31) 優先権主張番号 特願平11-148378

(32) 優先日 平成11年5月27日 (1999.5.27)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000006208

三菱重工業株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番1号

(71) 出願人 000002277

住友軽金属工業株式会社

東京都港区新橋5丁目11番3号

(72) 発明者 坂口 康弘

兵庫県高砂市荒井町新浜2丁目1番1号

三菱重工業株式会社高砂研究所内

(74) 代理人 100064908

弁理士 志賀 正武 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 Bの含有量を高くして中性子吸収能を向上させ、しかも、従来材と比較して機械的性質や加工性の面でも優れている、中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材を提供する。

【解決手段】 本発明による中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材は、AlまたはAl合金母相中に中性子吸収能を有するBまたはB化合物の粉末をB量として

1. 5重量%以上9重量%以下含有し、加圧焼結されたことを特徴としている。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 AlまたはAl合金母相中に中性子吸収能を有するBまたはB化合物をB量として1.5重量%以上9重量%以下含有し、加圧焼結したことを特徴とする中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材。

【請求項2】 AlまたはAl合金粉末に中性子吸収能を有するBまたはB化合物の粉末をB量として1.5重量%以上9重量%以下添加後、加圧焼結することを特徴とする中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項3】 前記AlまたはAl合金粉末が急冷凝固粉であることを特徴とする請求項2記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項4】 前記B化合物粉末として、炭化ホウ素(B<sub>4</sub>C)粒子を使用することを特徴とする請求項2ないし3の何れかに記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項5】 前記AlまたはAl合金粉末の平均粒径が5～150μmであり、かつ、使用するB化合物粉末が平均粒径1～60μmのB<sub>4</sub>C粒子であることを特徴とする、請求項2ないし4の何れかに記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項6】 前記加圧焼結が、熱間押出、熱間圧延、熱間静水圧プレス又はホットプレスの何れか1種、または2種以上の組合せで行うことを特徴とする請求項2ないし5の何れかに記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項7】 粉末を収容する缶内を350℃～550℃の加熱下で真空脱ガスした後に缶を封止し、しかる後に内部を真空に保ったままの状態に加圧焼結することを特徴とする請求項2ないし6の何れかに記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

【請求項8】 前記加圧焼結後に熱処理を施すことを特徴とする請求項2ないし7の何れかに記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、例えば使用済み核燃料の輸送容器や貯蔵容器等の構造材料として有用な、中性子吸収能を備えたアルミニウム(Al)複合材及びその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】ホウ素(B)は中性子の吸収作用を有する元素であるが、実際に該作用を有するのは、天然B中にほぼ20%の割合で存在する同位体<sup>10</sup>Bのみであることが知られている。従来より、中性子の吸収作用を有する構造用材料として、Al合金中にBを添加した合金が用いられている。このような合金を製造する場合には、従来、通常の溶解法が採用されており、B添加量の増加にしたがって液相線温度が急激に上昇するため、Al合

金中にBを粉末状またはAl-B合金の形で添加する、Al溶湯中にKBF<sub>4</sub>等のホウ弗化物の形で添加してAl-B金属間化合物を生成する、液相線温度以下の固液共存域から鑄造する、あるいは、加圧鑄造法を用いる、といった方法が用いられているが、強度や延性等の機械的性質を高めるために種々の改良が加えられている。これらの改良については、たとえば特開昭59-501672、特開昭61-235523、特開昭62-70799、特開昭62-235437、特開昭62-243733、特開昭63-312943、特開平1-312043、特開平1-312044、特開平9-165637等、多くの例を挙げることができる。

【0003】このような溶解法によるAl-B合金は、中性子を吸収するBを添加すると、B化合物としてAlB<sub>2</sub>及びAlB<sub>12</sub>の金属間化合物が存在し、特に、AlB<sub>12</sub>が多く存在すると加工性が低下する。しかし、このAlB<sub>12</sub>の量を制御するのは技術的にも困難であるため、実用材としてはBの量を1.5重量%まで添加するのが限度であり、従って中性子吸収の効果はそれほど大きくない。

【0004】また、中性子吸収作用を有する材料としては、上述した溶解法によるAl-B合金の他にも、ボラール(Borall)と呼ばれているものがある。このボラールは、Al母材に30～40重量%のB<sub>4</sub>Cを配合した粉末をサンドイッチにして圧延した材料である。しかし、このボラールは、引張強さが40MPa程度と低いだけでなく、伸びも1%程度と低く、また、成形加工が困難なため、構造材としては用いられていないのが現状である。Al-B<sub>4</sub>C複合材の今一つの製造法として、粉末冶金法の利用が挙げられる。Al合金とB<sub>4</sub>Cを、共に粉末の状態で均一に混合してから固化成形しようというものであり、前記した溶解に伴うトラブルを回避できるほか、マトリックス組成をより自由に選択できる等のメリットを有する。米国特許US5486223およびそれに続く同一発明者による一連の発明においては、粉末冶金法を用いて強度特性に優れるAl-B<sub>4</sub>C複合材を得る方法が述べられており、なかでもUS5700962は中性子遮蔽材料の製作を主眼においたものとなっている。しかしながら、これらの発明においては、マトリックスとの結合性を高めるために特定元素を添加した特殊なB<sub>4</sub>Cを使用する上、工程も複雑で、工業レベルでの実用化にはコスト面で大きな問題があった。また、粉末をCIPで固めたのみの多孔質な成形体を加熱・押出するためにガスの巻き込みが生じる、マトリックスの組成によってはピレット焼結時に625℃以上という高温に曝すことで特性が著しく劣化する、といった性能上の懸念事項も多かった。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】上述したように、溶解法で製造したAl合金は、B等の中性子吸収能を有する

化合物を添加する量に限界があるため、その中性子吸収効果は小さいものであった。その解決のため、前述のとおり多くの発明がなされてきたが、それらの実施には、内包する化合物相（ $AlB_2$ 、 $AlB_{12}$  他）の存在比までをコントロールした母合金を溶解する、極めて高価な濃縮ボロンを使用するなど、生産コストを大幅に上昇させる前提条件が多く、工業レベルでの実用化は困難であった。また、操業面においても、炉内の汚染（高B濃度のドロスを除去する炉洗いが必要となる、投入したフッ化物等が残留してコンタミネーションとなる、等）や高い溶解温度（1200℃以上を必要とするものもあり）による炉材へのダメージ等の問題から、通常のAl用溶解設備での実施は事実上不可能に近かった。また、 $B_4C$ の含有量が30～40重量%と高いボラールは、加工性に問題があって構造材としては使用できない状況にある。このような背景から、Bの含有量を増して高い中性子吸収能を有するのは勿論のこと、引張強さや伸び等の機械的性質にも優れていて、加工が容易で構造材として使用可能な中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材及びその製造方法が望まれていた。

【0006】そこで本発明は、Bの含有量を増して中性子吸収能を向上させることができ、しかも、機械的性質や加工性の面でも優れている、中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材及びその製造方法の提供を課題とする。発明者らは、上記のような現状に鑑み、研磨材あるいは耐火物材料として市中で安価に流通している通常の $B_4C$ を使用し、必要な中性子遮蔽能と強度特性をバランスよく満たすAl基複合材料を安価に製造する方法を創出すると共に、同法が最大の効果を発揮する合金組成（ $B_4C$ 添加量も含む）を見出したものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するため以下の手段を採用した。請求項1に記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材は、AlまたはAl合金母相中に中性子吸収能を有するBまたはB化合物をB量として1.5重量%以上9重量%以下含有し、加圧焼結したことを特徴とするものである。この場合、AlまたはAl合金母相中に含有する中性子吸収能を有するBまたはB化合物は、B量として2重量%以上5重量%以下とするのがより好ましい。

【0008】このような中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材によれば、BまたはB化合物の添加量が高く、引張特性などの機械的性質にも優れたアルミニウム複合材となる。また、その製造コストも安価に抑えることができる。

【0009】請求項2に記載の中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法は、AlまたはAl合金粉末に中性子吸収能を有するBまたはB化合物の粉末をB量として1.5重量%以上9重量%以下添加後、加圧焼結することを特徴とするものである。

【0010】この場合、AlまたはAl合金粉末としては、均一で微細な組織を有する急冷凝固粉を使用するのが好ましく、B化合物粉末としては、炭化ホウ素（ $B_4C$ ）粒子を使用するのが好ましい。そして、前記AlまたはAl合金粉末の平均粒径を5～150 $\mu m$ とし、かつ、使用するB化合物粉末を平均粒径1～60 $\mu m$ の $B_4C$ 粒子とするのが好ましい。また、加圧焼結の方法としては、熱間押出、熱間圧延、熱間静水圧プレス又はホットプレスの何れかまたは組合せで行うことができる。これらの加圧焼結方法は、いずれも粉末を缶内に封入（キャニング）した後、加熱下において真空引きすることにより缶内の粉末表面に吸着したガス成分及び水分を除去し、しかる後に缶を封止することを特徴とする。そして、このキャニングされた粉末を、缶内を真空に保ったままで熱間加工に供する。さらに、前記加圧焼結を実施した後は、必要に応じて適宜熱処理を施すことが好ましい。

【0011】このような中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材の製造方法によれば、加圧焼結による粉末冶金法を採用することで、BまたはB化合物の添加量を増したとしても、引張特性などの機械的性質にも優れたアルミニウム複合材が製造できる。従って、中性子吸収能を向上させることができ、かつ、加工性にも優れたアルミニウム複合材を提供できる。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明に係る中性子吸収能を備えたアルミニウム複合材及びその製造方法の一実施形態を説明するとともに、各内容の範囲限定理由について述べる。本発明におけるAl複合材の製造方法は、アトマイズ法などの急冷凝固法で作成したAlまたはAl合金粉末と、中性子吸収能を有するBまたはB化合物の粉末とを混合して、加圧焼結するものである。ここで添加するB量は、1.5重量%以上9重量%以下の範囲である。

【0013】ベースとして使用できるAlまたはAl合金粉末は、純アルミニウム地金（JIS 1xxx系）、Al-Cu系アルミニウム合金（JIS 2xxx系）、Al-Mg系アルミニウム合金（JIS 5xxx系）、Al-Mg-Si系アルミニウム合金（JIS 6xxx系）、Al-Zn-Mg系アルミニウム合金（JIS 7xxx系）、Al-Fe系アルミニウム合金（Fe含有率が1～10重量%）の他にも、例えばAl-Mn系アルミニウム合金（JIS 3xxx系）などがあり、強度、延性、加工性、耐熱性など必要とする特性に応じて選択することが可能で、特に限定されるものではない。これらのAlまたはAl合金としては、均一で微細な組織を持つ急冷凝固粉を使用する。この急冷凝固粉を得るための急冷凝固法としては、単ロール法、双ロール法、エアアトマイズやガスアトマイズなどのアトマイズ法といった周知技術を採用できる。このよ

うな急凝固法によって得られたAl合金粉末は、好適には平均粒径が $5 \sim 150 \mu\text{m}$ の粉末を使用する。その理由は、平均粒径が $5 \mu\text{m}$ 未満では微粉のために各粒子が凝集するので、結局大きな粒子の塊になることとアトマイズ法による製造の限界（微細な粉末だけを分け取る必要があり、粉末製造歩留が極端に悪化して、コストを急増させる）のためであり、平均粒径が $150 \mu\text{m}$ を超えると急凝固でなくなるなどのアトマイズ法による製造の限界と、微細な添加粒子との均一混合が困難になるといった問題とのためである。最も望ましい平均粒径は $50 \sim 120 \mu\text{m}$ である。急凝固の急冷速度は、 $10^2 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{sec}$ 以上、望ましくは $10^3 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{sec}$ 以上である。

【0014】一方、上記AlまたはAl合金粉末と混合するBまたはB化合物は、特に高速中性子の吸収能が大きいという特徴を有している。なお、本発明で使用可能な好適なB化合物としては、 $\text{B}_4\text{C}$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ などがある。なかでも $\text{B}_4\text{C}$ は、単位量当たりのB含有量が多く少量の添加で大きな中性子吸収能を得られる他、非常に高い硬度を有するなど構造材への添加粒子として特に好適である。このようなBまたはB化合物の添加量は、B量としての重量%で1.5以上9以下、好適には重量%で2以上5以下とする。この理由は、以下の通りである。アルミニウム合金（およびアルミニウム基複合材）を原子力分野における構造材、より具体的には使用済核燃料の貯蔵・輸送用容器の構造材として使用することを考えた場合、その部材厚さは必然的に5mmから30mm程度となる。これは、該範囲を超えた厚肉材では軽量のアルミニウム合金を使用する意味が薄れ、一方、構造材に要求される信頼性を確保するためには、常識的なアルミニウム合金の強度を想定すれば極端な薄肉化が困難なことは明らかなためである。言い換えれば、このような用途に使用するアルミニウム合金の中性子遮蔽能力は、上記の範囲の厚さにおいて必要十分な値であればよく、一部の先行発明に述べられているような極端に多量のBや $\text{B}_4\text{C}$ の添加は、いたずらに加工性の悪化や延性の低下をもたらすのみとなる。発明者らの実験によれば、市場に安価に流通する通常の $\text{B}_4\text{C}$ をB源として使用した場合、目的とする用途に最適な特性を得られるのは、 $\text{B}_4\text{C}$ 添加量が2～12重量%、B量換算で1.5～9重量%の場合のみである。 $\text{B}_4\text{C}$ 量がこれを下回ると、必要な中性子吸収能が得られず、一方、上記範囲を超えて添加された場合には、押出等の成型時に割れが発生するなどして製作が困難となるのみならず、得られた材料も延性が低く、構造材として要求される信頼性を確保することができない。また、BまたはB化合物の粉末は、好適には平均粒径が $1 \mu\text{m} \sim 60 \mu\text{m}$ のものを使用する。その理由は、平均粒径が $1 \mu\text{m}$ 未満では微粉のために各粒子が凝集するので、結局大きな粒子の塊になって均一な分散が得られなくなることと歩留が極端に悪く

なるためであり、 $60 \mu\text{m}$ を超えると、それらが異物となって材料強度や押出性を低下させるのみならず、さらには材料の切削加工性も悪化するためである。

【0015】上述したAlまたはAl合金粉末とBまたはB化合物の粉末とを混合した後は、加圧焼結を施してAl合金複合材を製造する。加圧焼結の製造法としては、熱間押出、熱間圧延、熱間静水圧プレス（HIP）又はホットプレスの何れかまたは組合せを採用してもよい。なお、加圧焼結時における好適な加熱温度は $350 \text{ } ^\circ\text{C} \sim 550 \text{ } ^\circ\text{C}$ である。また、本発明の特徴のひとつは、混合した粉末を加圧焼結に供する前に、Al合金製の缶内に封入して真空加熱脱ガスを施すことにある。この工程を省略すると、最終的に得られる材料中のガス量が多くなり、所期の機械的性質が得られなかったり、熱処理時に表面にフクレが発生したりする。真空加熱脱ガスに好適な温度範囲は $350 \text{ } ^\circ\text{C} \sim 550 \text{ } ^\circ\text{C}$ であり、下限値以下では充分な脱ガス効果が得られず、上限以上の高温にさらすと、材質によってはその特性劣化が著しくなる。

【0016】加圧焼結後には、必要に応じて熱処理を実施する。例えばAl-Mg-Si系のAl合金粉末をベースとして使用した場合にはJISのT6処理を、Al-Cu系のAl合金粉末をベースとして使用した場合も同様にT6処理を施すが、純AlやAl-Fe系Al合金などの粉末をベースとして使用した場合には熱処理は不要であり、この場合はJISのT1処理に該当する。

【0017】このような製造方法により、AlまたはAl合金母相中に、中性子吸収能を有するBまたはB化合物をB量として1.5重量%以上9重量%以下含有し、加圧焼結されたアルミニウム複合材を得ることができる。なお、BまたはB化合物は高速中性子吸収能に優れていることが知られているが、必要に応じて低速中性子吸収能に優れたGdまたはGd化合物を適宜添加して含有させた複合材としてもよい。

【0018】以下に、具体的な実験例を示して詳細に説明する。この実験では、粉末冶金法によりAl- $\text{B}_4\text{C}$ 粒子複合材を製造し、その機械的性質を調べた。

#### <使用材料>

(1) ベースとなるアルミニウムまたはアルミニウム合金粉末として、下記の4種類を使用した。

ベース①：純度99.7%の純Al地金を使用し、エア・アトマイズ法により粉末を得た。これを、種々の粒度に分級して使用した。以後、「純Al」と呼ぶ。

ベース②：標準組成（重量%）がAl-0.6Si-0.25Cu-1.0Mg-0.25Cr（JIS 6061）のAl合金を使用し、 $\text{N}_2$ ガス・アトマイズ法により粉末を得た。これを $150 \mu\text{m}$ 以下（平均 $95 \mu\text{m}$ ）に分級して使用した。以後、「6061Al（Al-Mg-Si系）」と呼ぶ。

ベース③：標準組成（重量%）がAl-6.3Cu-0.3Mn-0.06Ti-0.1V-0.18Zr

(JIS 2219)のAl合金を使用し、N<sub>2</sub>ガス・アトマイズ法により粉末を得た。これを150μm以下(平均95μm)に分級して使用した。以後、「2219Al(Al-Cu系)」と呼ぶ。

ベース④：標準組成(重量%)がAl-6FeのAl-Fe系Al合金を使用し、N<sub>2</sub>ガス・アトマイズ法により粉末を得た。これを150μm以下(平均95μm)に分級して使用した。以後、「Fe系Al」と呼ぶ。

【0019】(2) 添加粒子として、表1に示す市販のB<sub>4</sub>Cを使用した。

【0020】

【表1】

	名称(種別)	平均粒径
①	金属添加用	23μm
②	金属添加用	0.8μm
③	研磨用#800	9μm
④	研磨用#280	59μm
⑤	研磨用#250	72μm

試料No.	混合粉末		熱処理	備考
	ベース	B <sub>4</sub> C添加量 (B換算重量%)		
A	純Al	0	なし(T1)	比較合金
B	純Al	2.3	なし(T1)	発明合金
C	純Al	4.7	なし(T1)	発明合金
D	純Al	9.0	なし(T1)	発明合金
E	純Al	11.3	なし(T1)	比較合金
F	6061Al	2.3	有り(T6)	発明合金
G	2219Al	2.3	有り(T6)	発明合金
H	Fe系Al	0	なし(T1)	比較合金
I	Fe系Al	2.3	なし(T1)	発明合金
J	Fe系Al	4.7	なし(T1)	発明合金
K	Fe系Al	9.0	なし(T1)	発明合金
L	Fe系Al	11.3	なし(T1)	比較合金

【0023】第2段階として、ベース粉末及び添加粒子の混合物を缶へ封入してキャニングを実施した。ここで使用した缶の仕様は、下記の通りである。

材質：JIS 6063(アルミニウム合金継目無管に同材質の底板を全周溶接)

直径：90mm

缶厚：2mm

【0024】第3段階として、真空加熱脱ガスを実施した。この工程では、キャニングされた粉末混合物を480℃まで昇温し、缶内部を1Torr以下まで真空引きして2h保持した。この脱ガス工程を実施したことで缶内の粉末表面に吸着したガス成分及び水分が除去され、押

【0021】

【実施例1】<使用粉末>ここでは、250μm以下に分級した純Al粉末(平均118μm)と、150μm以下に分級した6061Al、2219Al、Fe系Alの各粉末(平均95μm)を使用した。また、添加粒子としては、平均粒径23μmの金属添加用B<sub>4</sub>Cを使用した。

<試料作成>

(1) ビレット製作

- 10 第1段階として、クロスロータリーミキサーを使用して、上記粉末及び添加粒子を10~15分混合した。なお、この実験では12種類の試料を作成したが、ベース(①~④)と添加粒子(Bの重量%を計算した値で表示)との組合せは、表2に示す通りである。

【0022】

【表2】

出用素材(以下ビレットと呼ぶ)の製作が完了する。

【0025】(2) 押出

この工程では、上記手順で製作されたビレットを500tonの押出機を使用して熱間で押出す。この場合の温度は430℃であり、押出比を約12として下記に示す平板状の押出形状に成形した。

【押出形状(断面)】 幅：48mm  
厚さ：12mm

【0026】(3) 熱処理(T6処理)

この実験では、押出成形後、表2に示した試料F及び試料Gについてのみ熱処理を実施した。試料Fの熱処理では、530℃で2時間の固溶化熱処理をした後水冷し、

さらに175℃で8時間の時効処理をしてから空冷した。また、試料Gの熱処理は、530℃で2時間の固溶化熱処理をした後水冷し、さらに190℃で26時間の時効処理をしてから空冷した。この熱処理を経て、試料の製作は終了する。なお、他の試料については、熱間での押出加工から冷却後自然時効させるT1処理を施した。

【0027】＜評価＞上述した各工程を経て製作された試料A～Lについて、下記に示す要領で評価を行った。なお、試料F、Gについては、上述した熱処理を施したT6材を用いて評価を行い、他の試料（A～E、H～L）については、熱処理なしのT1材を用いて評価を行った。

(1) ミクロ組織観察

全試料A～Lについて、押出材中央部のL断面（押出方

向に平行）、T断面（押出方向と直角）で実施した。この結果、何れの試料についても均一で微細な組織になっていることが確認できた。

(2) 引張試験

この引張試験は、常温及び250℃の二つの温度条件で実施した。常温での引張試験は、全試料A～Lについて各々試験片の数nを2（n=2）として実施し、また、250℃での引張試験は、試料A及びC～Eを除く8種類の試料について各々n=2として実施した。なお、何れの引張試験においても、平行部の直径6mmの丸棒試験片を使用して試験を行ったが、250℃の引張試験の場合は、この試験片を250℃で100時間保持した後、試験を実施した。この試験結果を表3に示す。

【0028】

【表3】

温度	試料 No.	熱処理	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	破断伸び (%)	備考
室温	A	T1	56	105	40	比較合金
	B	T1	62	112	39	発明合金
	C	T1	64	114	33	発明合金
	D	T1	70	117	22	発明合金
	E	T1	80	110	8	比較合金
	F	T6	278	307	49	発明合金
	G	T6	291	426	27	発明合金
	H	T1	165	262	60	比較合金
	I	T1	175	271	21	発明合金
	J	T1	184	270	18	発明合金
	K	T1	199	281	13	発明合金
	L	T1	206	267	5	比較合金
250℃ (100時間 保持後)	B	T1	32	48	36	発明合金
	F	T6	74	98	23	発明合金
	G	T6	134	185	13	発明合金
	H	T1	96	143	23	比較合金
	I	T1	107	149	20	発明合金
	J	T1	107	153	12	発明合金
	K	T1	112	160	12	発明合金
	L	T1	115	150	10	比較合金

【0029】表3の実験結果を見ると、0.2%耐力については、室温では56MPa（試料A）～291MPa（試料G）の範囲にあり、250℃の高温では32MPa（試料B）～134MPa（試料G）の範囲にある。また、引張強さについては、室温では105MPa（試料A）～426MPa（試料G）の範囲にあり、250℃の高温では48MPa（試料B）～185MPa（試料G）の範囲にあって、室温時はもとより高温時においても、室温におけるボラーの引張強さ41MPa（表4参照）より優れていることがわかる。

【0030】続いて、破断伸びについて見ると、室温では5%（試料L）～60%（試料H）の範囲にあり、250℃の高温では10%（試料L）～36%（試料B）の範囲にあって、何れの温度条件においてもボラーの

伸び1.2%（表4参照）より優れた結果を示している。

【0031】図1及び図2は、引張特性に対する温度の影響を示したグラフであり、両グラフ共、表3に示した試験結果から試料F、G、I（いずれもB量2.3重量%）の数値をプロットしたものである。このグラフを見ると、試料Gが0.2%耐力及び引張強さ共に最も高い値を示しているが、傾斜が比較的大きいことから温度上昇による影響をうけやすいことがわかる。また、試料Iは、0.2%耐力及び引張強さ共に室温では3試料中で最も低い値となっているが、温度上昇に伴う傾斜は最も小さい。このため、250℃の高温では試料Fと逆転しており、すなわち、3試料中では温度の影響が最も小さいことを示している。なお、試料Fは、特に0.2%耐

力の傾斜が大きくなっており、温度上昇の影響を受けやすいことを示している。

【0032】続いて、図3～図5のグラフには、B添加量（重量%）が引張試験結果に及ぼす影響が示されている。図3は、純Alベースの試料A～Eについて、温度条件を室温として、0.2%耐力（MPa）、引張強さ（MPa）、及び破断伸び（%）の値（表3参照）をそれぞれプロットして示したものである。このグラフを見ると、B添加量が増加するにつれて、細破線で示した0.2%耐力（MPa）及び実線で示した引張強さ（MPa）が大きくなり、反対に、破線で示した破断伸び（%）は小さくなるのがわかる。

【0033】図4は、Fe系Al（Al-6Fe）ベースの試料H～Lについて、温度条件を室温として、0.2%耐力（MPa）、引張強さ（MPa）、及び破断伸び（%）の値（表3参照）をそれぞれプロットして示したものである。このグラフを見ると、B添加量が増加するにつれて、細破線で示した0.2%耐力（MPa）及び実線で示した引張強さ（MPa）が図3と同様に大きくなっている。しかし、破線で示した破断伸び（%）については、Bを2.3重量%添加することにより無添加時と比較して急激に低下するものの、2.3重量%から4.7重量%までB量を増加させてもその低下量は小さいものであることがわかる。

【0034】図5は、図4と同様のFe系Al（Al-6Fe）ベースの試料H～Lについて、温度条件を250℃の高温として、0.2%耐力（MPa）、引張強さ（MPa）、及び破断伸び（%）の値（表3参照）をそれぞれプロットして示したものである。このグラフを見ると、B添加量が増加するにつれて、細破線で示した

0.2%耐力（MPa）及び実線で示した引張強さ（MPa）が図3及び図4と同様に大きくなっている。また、破線で示した破断伸び（%）については、Bを2.3重量%添加することにより無添加時と比較して急激に低下する図4の現象が解消され、全体としての数値は低いものの、図3に示したものと同様にB量の増加につれて緩やかに低下する傾向を示している。

【0035】以上3つのグラフ（図3～図5）から確認できるのは、マトリックスの組成に関わらず、B<sub>4</sub>C粒子の添加量がB換算で9%を超えると、0.2%耐力がほとんど向上しない一方で破断伸びが急激に低下し、それに伴って引張強さもまた低下するという共通の傾向である。いずれの材料も例えばボラルより高い伸びを示している（表4参照）ものの、例えば現実に原子炉や使用済核燃料用容器の構造材として使用することを想定した場合、信頼性の点で常温伸び10%以上は最低限必要な値であり、これを満たしうるB<sub>4</sub>C添加量はB換算で9%以下であると結論できる。B量の少ないものについては、強度、延性の面での問題は認められないが、添加量の下限値は、必要とされる中性子吸収能からおのずと定まるものであり、先に述べたとおりその値はB換算で1.5重量%である。

【0036】上述した表3の試験結果のうち、試料B、C、F、G、I、J（何れもB量2.3または4.7重量%）の6種類について、そのB量（重量%）、引張強さ（MPa）、及び伸び（%）を下記の表4に抜粋して示し、溶解法による従来品の各値と比較する。なお、表4に示す引張強さ及び伸びは室温での値である。

【0037】

【表4】

材質		B量 (重量%)	引張強さ (MPa)	伸び (%)
本発明品	純Al複合材(No. B)	2.3	112	39
	純Al複合材(No. C)	4.7	114	33
	Al-Mg-Si系複合材(No. F)	2.3	307	49
	Al-Cu系複合材(No. G)	2.3	429	27
	Al-Fe系複合材(No. I)	2.3	271	21
	Al-Fe系複合材(No. J)	4.7	270	18
従来品	Al-Mg系合金	0.9	245	20
	Al-Mg-Si系合金	0.9	270	12
	Al-Zn-Mg系合金	0.9	500	11
	Al-Cu系合金	0.9	370	15
	Al-Mn系合金	0.9	150	11
	ボラル	27.3	41	1.2

【0038】最初にB添加量について比較すると、本発明品では2.3または4.7重量%の添加がなされており、0.9重量%の各Al合金よりB添加量が大きい分

だけ高い中性子吸収能を有する複合材であることがわかる。また、ボラルのB添加量は27.3重量%と非常に高い値になっているが、後述する引張強さ及び伸びの

値が極めて低いものであるため、加工性に乏しいことがわかる。

【0039】次に、引張強さを比較すると、本発明品ではB量2.3重量%の純Al複合材(試料B)が最も低い112MPaとなっており、従来品ではAl-Mn系合金の150MPaが最も低い値になっている。しかし、この試料Bは、従来品と比較してB添加量が高いため中性子吸収能に優れており、また、伸びも従来品で最大の20%より大幅に高い値を示しているため、加工性の面でも実用に耐えうるものである。特に、ボラールと比較した場合には、引張強さや伸びの特性が極めて高いため、加工性の面で優れていることがわかる。なお、ベースをAl合金と限定した場合、引張強さが最低値となるのは、B量4.7重量%のAl-Fe系複合材(試料J)であり、その値は270MPaとなる。

【0040】また、本発明品で最も引張強さに優れているのはB量2.3重量%のAl-Cu系複合材(試料G)であり、その値は429MPaとなっている。これに対して、従来品で最も引張強さに優れているのはAl-Zn-Mg系合金の500MPaであるが、この場合の伸びは11%と、表4中に示した本発明品の最低値である18%より低い。この傾向、すなわち引張強さのわりには伸びが低い(11~20%)という傾向は従来品であるB添加アルミニウム合金に共通しており、B含有量をも勘案すれば、全体的に本発明品の伸び(18~49%)と比較して低いものとなっているといえる。

【0041】こんどは、表4に基づき、同系のアルミニウム複合材(本発明品)とアルミニウム合金(従来品)とを比較してみる。最初に、Al-Mg-Si系複合材(試料F)とAl-Mg-Si系合金とを比較すると、

篩サイズ ( $\mu\text{m}$ )	篩下の平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	分級歩留(%)
355	162	99
250	140	88
180	120	60
105	52	21
45	21	5
32	5	3

【0046】粒度分布は合金組成やアトマイズ条件で若干変動する可能性があるものの、篩サイズを小さくすることで分級歩留が急激に低下することが確認できる。工業レベルでの使用を前提にすれば、歩留が一桁となる45 $\mu\text{m}$ 以下の粉末は非現実的であると判断せざるを得ない。

【0047】<試料作成>表5に示した各粒度の6N01粉末と、表1に示した5種類のB<sub>4</sub>C粒子を、表6に

B量、引張強さ及び伸びの何れの面でも本発明品が優れた値を示している。すなわち、B量は2.3重量%に対し0.9重量%、引張強さは307MPaに対し270MPa、そして、伸びは49%に対し12%となっており、何れの値も本発明品が高くなっている。

【0042】続いて、Al-Cu系複合材(試料G)とAl-Cu系合金とを比較すると、この場合においてもB量、引張強さ及び伸びの何れの面でも本発明品が優れた値を示している。すなわち、B量は2.3重量%に対し0.9重量%、引張強さは429MPaに対し370MPa、そして、伸びは27%に対し15%となっており、何れの値も本発明品が高くなっている。

【0043】このように、本発明のアルミニウム複合材は、高いB量を添加でき、しかも、引張強さや伸びなどの引張特性にも優れているので、高い加工性を得ることができる。特に、使用済み核燃料の輸送容器や貯蔵容器等の構造部材として用いることを考えると、250℃において引張強さ98MPa、伸び10%以上という機械的性質を有することが望ましいが、250℃の試験結果から、ベースとして純Al粉末以外のアルミニウム合金粉末を使用することで、ほぼ達成可能であることを確認できた。

【0044】

【実施例2】<粉末分級>エアアトマイズで製作したJIS6N01組成の粉末を、種々のサイズの篩で分級した。使用した篩サイズと、それぞれの場合における「篩下」の平均粒径、分級歩留を表5に示す。

【0045】

【表5】

示す組合せで混合した。B<sub>4</sub>Cの添加量はいずれも3重量%(B換算で2.3重量%)、混合時間は実施例1と同様10~15分とした。混合の完了した粉末は、実施例1と同様の手順にて缶封入、真空加熱脱ガス、押出を行い、断面形状48mm×12mmの押出材を得た。熱処理は実施しなかった。

【0048】

【表6】



No.	使用6N01粉末 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	使用B <sub>4</sub> C 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	
1	5	9	発明合金
2	5	23	発明合金
3	5	59	発明合金
4	21	9	発明合金
5	21	23	発明合金
6	21	59	発明合金
7	100	9	発明合金
8	100	23	発明合金
9	100	59	発明合金
10	149	9	発明合金
11	149	23	発明合金
12	149	59	発明合金
13	5	0.8	比較合金
14	5	72	比較合金
15	149	0.8	比較合金
16	149	72	比較合金
17	162	9	比較合金
18	162	59	比較合金

## 【0049】＜評価＞

## (1) ミクロ組織観察

各押出材の頭部、中間部、尾部、それぞれの断面中央部、外周部（計6箇所）において、L断面（押出方向と平行）ミクロ組織の画像解析を行い、B<sub>4</sub>C粒子についてその局所的な凝集の有無と、全体的な分布の均一性を調査した。具体的には、各観察位置においてB<sub>4</sub>C粒子の面積率測定を5視野（1視野は1mm×1mm）ずつ行った（B<sub>4</sub>Cの比重が約2.51であることから、純Alの比重を2.7として、Al合金中におけるB<sub>4</sub>Cの重量%は、Vol. % × 2.51 / 2.7と概算でき

る。一方、断面におけるB<sub>4</sub>Cの面積率は、Vol%にほぼ等しいとみなすことができる。よって、ここではB<sub>4</sub>Cの面積率の標準値を3% × 2.7 / 2.51 = 2.8%とした。）。単一視野中のB<sub>4</sub>C面積率が標準値の2倍（すなわち5.6%）に達するものが1点でもあった場合には「凝集あり」、各位置における5視野の面積率の平均が基準値±0.5%（すなわち2.3～3.3%の範囲）をはずれた場合には「分布不均一」と判断した。その結果を、表7に示す。

【0050】

【表7】

No.	使用6N01粉末 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	使用B <sub>4</sub> C 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	B <sub>4</sub> C分布の判定		
			凝集	均一性	
1	5	9	なし	均一	発明合金
2	5	23	なし	均一	発明合金
3	5	59	なし	均一	発明合金
4	21	9	なし	均一	発明合金
5	21	23	なし	均一	発明合金
6	21	59	なし	均一	発明合金
7	100	9	なし	均一	発明合金
8	100	23	なし	均一	発明合金
9	100	59	なし	均一	発明合金
10	149	9	なし	均一	発明合金
11	149	23	なし	均一	発明合金
12	149	59	なし	均一	発明合金
13	5	0.8	あり	均一	比較合金
14	5	72	なし	不均一	比較合金
15	149	0.8	あり	均一	比較合金
16	149	72	なし	均一	比較合金
17	162	9	なし	均一	比較合金
18	162	59	なし	均一	比較合金

【0051】本発明の合金においては、何れも良好なB<sub>4</sub>Cの分布が得られていたのに対し、平均0.8 $\mu\text{m}$ と微細なB<sub>4</sub>C粒子を使用した比較合金No. 13, No. 15では局部的な凝集が生じていた。また、平均5 $\mu\text{m}$ の微細Al合金粉末に同72 $\mu\text{m}$ の粗大B<sub>4</sub>Cを添加したNo. 14では、押出材内の各位置間で、粒子の分布に不均一が生じていた。

#### 【0052】(2) 常温引張試験

製作した各押出材を、常温での引張試験に供試した。試験片形状は、実施例1と同じ、平行部径6mmの丸棒試験片である。結果を表8に示す。合否の基準値を実施例1で述べたとおり「破断伸び10%以上」とすると、本発明合金は何れもこれを満たしていることがわかる。こ

れに対して平均72 $\mu\text{m}$ という粗大B<sub>4</sub>Cを添加した比較材No. 14やNo. 16、さらには母材粉末の平均粒径が162 $\mu\text{m}$ と大きいNo. 17およびNo. 18では延性の低下が著しく、前記基準を満足することができなかった。以上の結果を総合すると、B<sub>4</sub>Cの凝集等がない均一な組織（すなわち均一な中性子吸収能）と構造物としての信頼性確保に必要な延性を兼ね備えた材料を得るためには、母材粉末粒径及び添加粒子の粒径を、本発明の範囲内に制御することが必要不可欠であることが確認できる。

【0053】

【表8】

No.	使用6N01粉末 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	使用B <sub>4</sub> C 平均粒径( $\mu\text{m}$ )	試験結果			
			0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	破断伸び (%)	
1	5	9	83	151	16	発明合金
2	5	23	80	143	13	発明合金
3	5	59	73	129	11	発明合金
4	21	9	81	153	22	発明合金
5	21	23	79	150	19	発明合金
6	21	59	71	132	14	発明合金
7	100	9	75	148	21	発明合金
8	100	23	76	149	15	発明合金
9	100	59	76	141	14	発明合金
10	149	9	70	143	14	発明合金
11	149	23	68	134	12	発明合金
12	149	59	62	131	11	発明合金
13	5	0.8	87	157	21	比較合金
14	5	72	72	123	7	比較合金
15	149	0.8	75	147	11	比較合金
16	149	72	56	129	8	比較合金
17	162	9	70	142	9	比較合金
18	162	59	63	125	7	比較合金

## 【0054】

【実施例3】＜試料作成＞表9に示す組成とプロセスにてピレットを製作し、430℃での押出に供した。ここで使用した純A1およびA1-6Fe合金粉末は、実施例1で使用したものと同じであり、前者は250 $\mu\text{m}$ 以下（平均118 $\mu\text{m}$ ）に分級したエアアトマイズ粉末、後者は150 $\mu\text{m}$ 以下（平均95 $\mu\text{m}$ ）に分級したN<sub>2</sub>ガスアトマイズ粉末である。また、使用したB<sub>4</sub>C粒子は、平均23 $\mu\text{m}$ のものである。各組成に配合した粉末は、クロスロータリミキサで20分間混合した。その後プロセスA～Eでは、実施例1、2と同様の手順で缶封入・真空加熱脱ガスを行ってピレットとし、押出に供した。このとき真空脱ガスの温度をAでは350℃、Bで

は480℃、Cでは550℃、Dでは300℃、Eでは600℃とし、押出は全て430℃で行った。押出形状は、実施例1と同じく48mm×12mmである。プロセスFでは、混合した粉末を4～5 Torrに減圧した200℃の炉中で2時間加熱後、大気中でゴム型に充填してCIP（冷間静水圧圧縮）成形した。得られた成形体は密度約75%（空孔率25%）であり、これを大気中で430℃まで加熱して、押出に供した。押出形状は48mm×12mmである。プロセスGでは、混合した粉末をそのままCIP成形し、大気中で430℃に加熱して押出した。押出形状は48mm×12mmとした。

## 【0055】

## 【表9】

使用粉末	B <sub>4</sub> C添加量 (重量%)	プロセス	備考
純A1 ( $<250\mu\text{m}$ )	3	A (350℃脱ガス)	発明合金
	3	B (480℃脱ガス)	発明合金
	3	C (550℃脱ガス)	発明合金
A1-6Fe ( $<150\mu\text{m}$ )	3	A (350℃脱ガス)	発明合金
	3	B (480℃脱ガス)	発明合金
	3	C (550℃脱ガス)	発明合金
純A1 ( $<250\mu\text{m}$ )	3	D (300℃脱ガス)	比較合金
	3	F (封缶なし脱ガス)	比較合金
	3	G (脱ガスなし)	比較合金
A1-6Fe ( $<150\mu\text{m}$ )	3	D (300℃脱ガス)	比較合金
	3	E (600℃脱ガス)	比較合金

【0056】＜評価＞各押出材について、押出材表面の観察、長手方向での常温引張試験、水素ガス量測定を実

施した。ガス量測定は、L I S A 0 6 に準拠し、真空溶融抽出—質量分析法で行った。結果を表10に示す。本発明の請求範囲内であるプロセスA～Cを用いて製作した材料では、押出材表面性状や機械的性質、水素ガス量ともに良好な結果が得られたのに対し、比較合金では以下のような問題が生じた。脱ガスを本発明の範囲よりも低い温度で実施したプロセスDでは、除去できなかった粉末表面の水素が押出時に放出され、押出材表皮の直下に気泡が生じる、いわゆる「フクレ」不良の原因となった。A1—Fe系合金の高強度は急冷凝固効果で金属間化合物粒子が微細・均一に分散して実現されるものであるが、極端に高い温度で脱ガスを実施したプロセスEでは、これらの化合物が粗大化し、強度および延性の急

激な低下を引き起こした。缶に封入せず脱ガスを行ったプロセスFでは、押出までに空気にさらされる工程を避け得ないうえ、その脱ガス温度も極めて低いため、水素ガス量は「脱ガスなし」に近く、押出材表面にフクレが生じたほか、強度・延性も低い値となった。脱ガスを行わないプロセスGでは、水素ガスの残留が極めて多くフクレが生じたほか、強度・延性も低い値となった。以上より、何れのマトリックス合金を用いた場合にも良好な特性を有するA1合金複合材を製作するためには、本発明で述べた製造方法を用いることが必要不可欠であることが確認された。

【0057】

【表10】

母材	プロセス	押出材表面	引 張			水素ガス量 (cc/100g)	備考
			耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	伸び (%)		
純A1	A (350℃脱ガス)	良好	58	105	21	9.0	発明合金
	B (480℃脱ガス)	良好	62	112	39	3.1	発明合金
	C (550℃脱ガス)	良好	63	114	41	2.9	発明合金
Al-6Fe	A (350℃脱ガス)	良好	201	279	10	8.8	発明合金
	B (480℃脱ガス)	良好	199	281	13	3.0	発明合金
	C (550℃脱ガス)	良好	195	282	15	2.9	発明合金
純A1	D (300℃脱ガス)	フクレ	49	88	11	17.1	比較合金
	F (封缶なし脱ガス)	フクレ	43	79	17	31.0	比較合金
	G (脱ガスなし)	フクレ	41	78	7	39.2	比較合金
Al-6Fe	D (300℃脱ガス)	フクレ	224	291	8	16.8	比較合金
	E (600℃脱ガス)	良好	91	127	7	2.9	比較合金

【0058】

【実施例4】エアアトマイズで製作し、250μm以下に分級した純A1粉末に、平均粒径23μmのB<sub>4</sub>C粒子を3重量% (B換算で2.3重量%) 添加し、実施例1、2と同様の方法にて断面形状48mm x 12mmの押出材を製作した。得られた押出材の引張特性は、耐力62MPa、引張強さ112MPa、破断伸び39%であった。高周波溶解炉で溶解した99.7%純度の純A1溶湯中に3重量%のB<sub>4</sub>Cをアルミ箔に包んで投入し、直ちに良く攪拌して複合材の製作を試みたが、B<sub>4</sub>C粒子は濡れ性が極めて悪く、大部分が湯面上に浮上した。よって、溶湯攪拌法によるA1—B<sub>4</sub>C複合材の製作は困難と判断された。99.7%純度の純A1地金と純Bを、B量が2.3重量%となるように配合し、高周波溶解炉で溶解して直径90mmのピレットに鑄造して押出に供した。押出形状は48mm x 12mmとした。Bの融点が2092℃と極めて高く、通常のA1合金用設備では取り扱いが困難と判断された (A1—Bの中間合金を使用しても、程度の差はあれ、問題は同じである)。また、得られた押出材は伸びが3.1%と低く、構造材としての使用は困難と判断された。以上の結果よ

り、高濃度のBを含有し、しかも高強度かつ高延性の材料を得るためには、本発明で述べたとおり、粉末法による複合材製作が最も適当であることが確認できる。

【0059】

【発明の効果】上述した本発明の中性子吸収能を備えたA1複合材の製造方法によれば、以下の効果を奏する。アルミニウムまたはアルミニウム合金粉末に中性子吸収能を有するBまたはB化合物の粉末を添加して混合した後、加圧焼結するという粉末冶金法を用いて製造したアルミニウム複合材は、従来の溶解法に比べて多量 (1.5～9重量%) のBまたはB化合物を添加することが可能になる。このため、B添加量の増加によって特に高速中性子の吸収能を向上させることができ、しかも、室温における引張強さが112～426MPaと高いことに加え、伸びが13～50%と非常に優れたアルミニウム複合材を提供できる。また、このアルミニウム複合材は、250℃の高温時においても、引張強さが48～185MPa、伸びが12～36%という特性を有する。すなわち、本発明を用いることで、高い中性子吸収能を有するのみならず、強度と延性のバランスにも優れた、構造部材として好適なアルミニウム複合材を得ることが

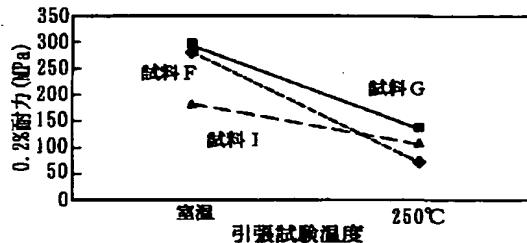
できる。なお、低速中性子吸収能に優れたGdまたはGd化合物を適宜追加して添加することにより、上述の各特性に加えて、低速中性子の吸収能をも付与することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

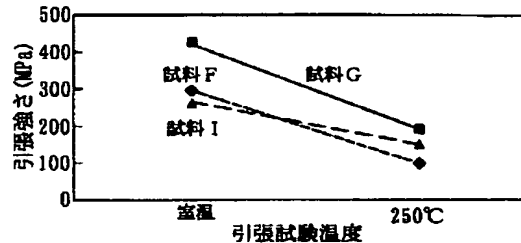
【図1】 本発明による中性子吸収能を備えたAl複合材の機械的性質に関するグラフで、表2の試料F、G、Iについて、0.2%耐力(MPa)と温度(℃)との関係を示している。

【図2】 本発明による中性子吸収能を備えたAl複合材の機械的性質に関するグラフで、表2の試料F、G、Iについて、引張強さ(MPa)と温度(℃)との関係を示している。

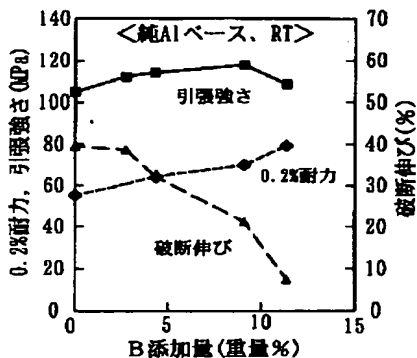
【図1】



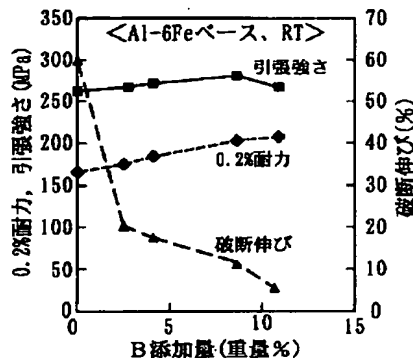
【図2】



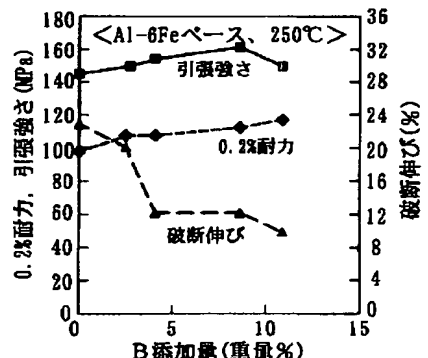
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(72)発明者 斎田 富兼  
兵庫県高砂市荒井町新浜2丁目1番1号  
三菱重工業株式会社高砂研究所内

(72)発明者 村上 和夫  
兵庫県神戸市兵庫区和田崎町一丁目1番1号  
三菱重工業株式会社神戸造船所内

(72)発明者 渋谷 和久  
東京都港区新橋5丁目11番3号 住友軽金属工業株式会社内

(72)発明者 時實 直樹  
東京都港区新橋5丁目11番3号 住友軽金属工業株式会社内

(72)発明者 高橋 辰巳  
東京都港区新橋5丁目11番3号 住友軽金  
属工業株式会社内